ORIGINAL ARTICLE

Removal of Metronidazole Using Ozone Activated Persulfate from Aqua Solutions in Presence of Ultrasound

Abdolmotalleb Seidmohammadi[1],
Ghorban Asgari[1],
Leyla Torabi[2]

[1] Associate Professor, Social Determinants of Health Research Center, Department of Environmental Health Engineering, School of Public Health, Hamadan University of Medical Sciences, Hamadan, Iran
[2] MSc in Environmental Health Engineering, School of Public Health, Hamadan University of Medical Sciences, Hamadan, Iran

(Received April 20, 2015 ; Accepted August 10, 2016)

Abstract

Background and purpose: Metronidazole is a serious environmental pollutant due to high consumption and persistence in biological degradation. This study aimed at removal of metronidazole using ozone (O_3) activated persulfate (PS) in presence of ultrasound (US).

Materials and methods: A laboratory scale study was carried out in batch reactor using US irradiation and O_3 generator apparatuses. The effects of operating parameters such as pH of the solution, different initial concentrations of persulfate, initial metronidazole concentration, different ion strength, and radical scavenger were evaluated. Metronidazole concentration was determined using DR-5000 Spectrophotometer in 320 nm wavelength.

Results: The results showed that removal of metronidazole decreased by increasing the pH of solution from 3 to 11. The removal rate of metronidazole was dependent on initial PS dosages and the highest rate of removal was found in 500 mg/l (94.7%), but in higher concentrations the removal rate decreased. Also, the metronidazole removal rate decreased by increase in initial concentration of metronidazole. The COD removal rate in optimum condition was 56%.

Conclusion: Activation of PS by US/O_3 process could serve as a novel treatment for removal of metronidazole in aqueous solution.

Keywords: ultrasound, ozonation, persulfate activation, metronidazole

J Mazandaran Univ Med Sci 2016; 26(143): 160-173 (Persian).

[Downloaded from jmums.mazums.ac.ir on 2026-11-24]

پژوهشی

مجله دانشگاه علوم پزشکی مازندران
دوره بیست و ششم شماره ۱۴۳ آذر سال ۱۳۹۵ (۱۷۳-۱۶۰)

حذف مترونیدازول با استفاده از پرسولفات فعال شده با ازن در حضور امواج فراصوت در محیط های آبی

عبدالمطلب صیدمحمدی[۱]
قربان عسگری[۱]
لیلا ترابی[۲]

چکیده

سابقه و هدف: مترونیدازول از جمله فراورده‌های داروئی است که به دلیل گستردگی مصرف و مقاومت در برابر تجزیه بیولوژیکی از آلاینده‌های مهم در محیط به شمار می‌رود. لذا این مطالعه به منظور بررسی امکان حذف این ماده آلی با استفاده از فرایند فعال‌سازی پرسولفات با استفاده از ازن در حضور امواج فراصوت مورد بررسی قرار گرفته است.

مواد و روش‌ها: این مطالعه در مقیاس آزمایشگاهی و در سیستم ناپیوسته با استفاده از راکتور حاوی مولد امواج فراصوت در فرکانس ۴۰ کیلوهرتز و سیستم تولید ازن به میزان ۰/۵ گرم در لیتر انجام شد. تاثیر پارامترهای بهره برداری نظیر pH محلول (۱۱-۳)، غلظت پرسولفات (۱۰۰ تا ۱۰۰۰ میلی گرم در لیتر)، غلظت اولیه مترونیدازول (۵ تا ۳۰ میلی‌گرم در لیتر)، تغییرات شدت یونی (۰/۱۳ تا ۱/۰۳ گرم در لیتر) و تاثیر ترت بوتانل در عملکرد فرایند مورد بررسی قرار گرفت. هم‌چنین میزان معدنی‌سازی از طریق اندازه گیری COD تعیین شد. غلظت مترونیدازول با استفاده از دستگاه اسپکتروفتومتر در طول موج ۳۲۰ نانومتر اندازه‌گیری شد.

یافته‌ها: نتایج حاصل از این مطالعه نشان داد که با افزایش pH محلول از ۳ تا ۱۱ کارائی، حذف ماده آلی کاهش یافت، به نحوی که بیش‌ترین حذف مترونیدازول در pH های ۳ و ۵ به ترتیب برابر با ۹۲ و ۹۰ درصد در زمان تماس ۶۰ دقیقه به دست آمد. کارایی حذف مترونیدازول به غلظت اولیه پرسولفات بستگی داشته و بیش‌ترین حذف ماده آلی در غلظت‌های اولیه ۵۰۰ و ۷۵۰ میلی‌گرم بر لیتر به ترتیب به میزان ۹۴/۷ و ۹۵ درصد حاصل و در مقادیر بیش از آن راندمان حذف کاهش یافت. نتایج بیانگر آن بود که با افزایش غلظت اولیه مترونیدازول، میزان حذف کاهش یافت. هم‌چنین تغییرات شدت یونی بر عملکرد فرایند، تاثیر نداشت. بر اساس دیگر نتایج این مطالعه، بیش‌ترین رادیکال فعال در این فرایند، رادیکال پرسولفات بود. میزان حذف COD در شرایط بهینه بهره‌برداری، ۵۶ درصد بود.

استنتاج: استفاده از فرایند فعال‌سازی پرسولفات با استفاده از ازن در حضور امواج فراصوت به میزان قابل توجهی می تواند مترونیدازول را حذف و به عنوان یک روش کارآمد به تنهائی یا به عنوان پیش تصفیه مورد استفاده قرار گیرد.

واژه های کلیدی: امواج فراصوت، ازن، فعال سازی پرسولفات، مترونیدازول

مقدمه

در دهه‌های اخیر، حضور آلاینده‌های با منشاء آلی در منابع آبی تهدیدی جدی برای محیط زیست و سلامتی انسان محسوب می‌شوند. ترکیبات دارویی یکی از انواع این آلاینده‌ها به شمار می‌روند که به‌طور

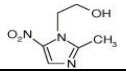
مولف مسئول: لیلا ترابی– همدان: دانشگاه علوم پزشکی همدان، دانشکده بهداشت E-mail:torabiliela@yahoo.com
۱. دانشیار، مرکز تحقیقات عوامل اجتماعی موثر بر سلامت، گروه مهندسی بهداشت محیط، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی همدان، همدان، ایران
۲. کارشناسی ارشد مهندسی بهداشت محیط، دانشکده بهداشت، دانشگاه علوم پزشکی همدان، همدان، ایران
تاریخ دریافت : ۱۳۹۵/۲/۱ تاریخ ارجاع جهت اصلاحات : ۱۳۹۵/۲/۵ تاریخ تصویب : ۱۳۹۵/۵/۲۰

[Downloaded from jmums.mazums.ac.ir on 2026-11-24]

عمده از طریق تخلیه فاضلاب و پساب‌های شهری و صنعتی وارد منابع آب سطحی و زیرزمینی می‌شوند. حضور مواد دارویی در محیط، به دلیل پایداری بالا، نه تنها باعث اختلال در فرایندهای متداول تصفیه فاضلاب در سیستم‌های تصفیه می‌شوند، بلکه اثرات سمی بر انسان و دیگر موجودات زنده داشته و به همین دلیل حذف آن‌ها مورد توجه محققین قرار گرفته است(۲،۱). از میان طیف گسترده آلاینده‌های دارویی، آنتی‌بیوتیک‌ها به دلیل اثرات ضد میکروبی، به‌طور گسترده در پزشکی و دامپزشکی مورد استفاده قرار گرفته و به همین دلیل از اهمیت ویژه‌ای برخوردار هستند. این ترکیبات آلی نه تنها از طریق پساب خروجی از صنایع داروسازی بلکه به دلیل ناقص بودن مکانیسم متابولیسم در طی دوره درمان، به محیط وارد می‌شوند(۳). عمده‌ترین تاثیر ترکیبات داروئی، سمیت برای میکروارگانیسم‌های موجود در محیط و بر هم زدن تعادل اکولوژی و مقاومت میکروارگانیسم ها در برابر اثرات ضد میکروبی ترکیبات داروئی می‌باشد(۳-۱). نتایج تحقیقات نشان داده است که بیش از ۸۰ نوع مختلف مواد دارویی فعال در محیط زیست در غلظت‌های تا چندین میلی‌گرم در خروجی واحدهای تصفیه فاضلاب به آب‌های سطحی، زیر زمینی و آب شرب شناسایی شده است(۴). غلظت برخی از این آلاینده‌ها در پساب کارخانه‌های دارویی به ۱۰۰ میلی‌گرم در لیتر نیز می‌رسد(۵).

ترونیدازول با فرمول شیمیایی $C_6H_9N_3O_3$ یکی از پرکاربردترین آنتی‌بیوتیک‌ها در جهان با خاصیت آنتی‌باکتریال و ضد التهابی از دسته نیتروایمیدازول بوده و برای درمان عفونت‌های ناشی از باکتری‌های بی‌هوازی و پروتوزئرها مورد استفاده قرار می‌گیرد. این ماده شیمیائی تنها داروی گروه نیتروایمیدازول است که سازمان بهداشت جهانی آن را در لیست داروهای اساسی قرار داده است(۶،۵). جدول شماره ۱ خصوصیات فیزیکی و شیمیایی مترونیدازول را بیان نموده است.

جدول شماره ۱: خصوصیات فیزیکی و شیمیایی مترونیدازول (۱، ۵)

وزن مولکولی (g mol-1)	۱۷۱/۲
حلالیت در آب (gr/l)	۹/۵
pKa	۲/۵۵
ساختار مولکولی	

تاثیر نامطلوب این ماده شیمیایی بر محیط و سلامت انسان لزوم حذف این ماده را از منابع آبی، بیش از بیش مورد توجه قرار داده است. استفاده از پرتو گاما، جذب سطحی، تجزیه نوری و بیولوژیکی، سیستم‌هایی غشایی، کواگولاسیون، اکسیداسیون شیمیایی توسط امواج فراصوت (US -Ultra Sound)، فنتون، US/ O_3 (۱۱)، O_3/US در حضور کاتالیست‌های مختلف، O_3 در حضور نانوذرات مختلف(۱۴-۶) و .... با مزایا و معایب خاص خود از روش‌های متداولی هستند که در حذف آنتی‌بیوتیک‌ها مورد استفاده قرار می‌گیرند. در این میان فرایندهای اکسیداسیون پیشرفته از جمله روش‌های نوین حذف آلاینده‌ها از محیط آبی به شمار می‌آیند که طی چند دهه اخیر با استقبال فراوانی از سوی محققین به عنوان فناوری‌های نوید بخش و جایگزین برای تصفیه فاضلاب‌های حاوی ترکیبات آلی خصوصاً آلاینده‌های آلی مقاوم مورد استفاده قرار گرفته است(۱۸-۱۴). از مهم‌ترین ویژگی‌های این فناوری، کارائی بالا، کم بودن هزینه‌های راه اندازی و بهره برداری و تنوع در روش‌های مورد استفاده است. امروزه استفاده از عوامل اکسید کننده نظیر پراکسید ئیدروژن، پرسولفات، پریودات و.... به منظور افزایش کارکرد فرایندهای اکسیداسیون با هدف حذف بیش تر آلاینده های آلی مورد توجه محققین قرار گرفته است(۱۹،۱۷). آنیون پرسولفات با فرمول شیمیایی $S_2O_8^{-2}$ به عنوان یک عامل اکسیدان با پتانسیل اکسیداسیون – احیای ۲/۰۱ ولت در فرایندهای حذف شیمیائی ترکیبات مقاوم مورد استفاده قرار گرفته است. پرسولفات به عنوان یک آنیون غیرانتخابی، محلول و پایدار دارای ویژگی‌های خاص و منحصر به فرد از جمله بالا بودن سرعت سینتیک،

[Downloaded from jmums.mazums.ac.ir on 2026-11-24]

پایداری بیش‌تر در دمای محیط و وابستگی کم‌تر به نوع ماده آلی می‌باشد. نتایج مطالعات متعدد بیانگر پایداری این ماده در محیط و عدم اثر بخشی آن به تنهائی در حذف مواد آلی و لزوم فعال‌سازی آن با هدف افزایش کارکرد فرایند در حذف مواد آلی است(۲۴-۲۰). امواج فرابنفش، امواج فراصوت، گرما و فلزات دو ظرفیتی از جمله مهم ترین عوامل فعالساز پرسولفات به شمار می‌روند که نهایتاً پرسولفات را به رادیکال‌های آزاد سولفات ($SO_4^{\bullet-}$) و هیدروکسیل (OH) با پتانسیل اکسیداسیوم و احیا ۲/۵۶ و ۲/۷۱ ولت که قابلیت حمله و اکسیداسیون ترکیبات آلی را بر اساس روابط ۱ تا ۴ دارند، تبدیل می کند(۲۲).

$$S_2O_8^{2-} +))) \rightarrow 2SO_4^{\bullet-} \quad (۱)$$

$$S_2O_8^{2-} + heat/light \rightarrow 2SO_4^{\bullet-} \quad (۲)$$

$$2SO_4^{\bullet} + H_2O \rightarrow H^+ + 2SO_4^{2-} + OH^{\bullet} \quad (۳)$$

$$Fe^{2+} + S_2O_8^{-2} \rightarrow Fe^{+3} + SO_4^{\bullet-} + SO_4^{2-} \quad (۴)$$

امواج فرا صوت به هر موج صوتی با فرکانس بیش تر از حد توانایی شنیداری انسان (۲۰ تا ۴۰کیلوهرتز) اطلاق می شود که به دلیل مزیت هائی از جمله کارائی بالا و عدم ایجاد آلودگی ثانویه در محیط زیست به عنوان یک عامل ضد میکروبی و حذف کننده آلاینده‌ها مورد استفاده قرار گرفته است(۲۵، ۲۶). مکانیسم اصلی این فرایند در اکسیداسیون آلاینده ها، ایجاد حفره یا میکرو حباب‌های حاصل از پدیده کاویتاسیون صوتی در آب است که منجر به ایجاد حفره‌هایی در آب می‌شود که حاصل آن، تولید فشار در حدود ۱۰۰۰ اتمسفر و دمای ۵۰۰۰ کلوین است که در نهایت منجر به تشکیل رادیکال هیدروکسیل خواهد شد. علی‌رغم محاسن فراوان امواج US، نتایج مطالعات متعدد در چند سال اخیر نشان داده است که کاربرد امواج US به صورت مجزا به دلیل کارایی کم، نیاز به زمان طولانی و انرژی محدود، قابلیت استفاده در مقیاس‌های بزرگ را ندارد(۲۹-۲۷). به‌همین دلیل برای افزایش راندمان و غلبه بر معایب اشاره شده، کاربرد توام امواج فراصوت به دلیل سهولت استفاده و عدم تولید محصولات جانبی سمی در ترکیب با سایر روش‌ها مورد توجه قرار گرفته است. در حین استفاده از امواج فراصوت در فعالسازی پرسولفات به دلیل عملیات تجزیه حرارتی پرسولفات، رادیکال های متعدد مطابق روابط ۱ تا ۵ از جمله $O^{\bullet 2-}, H^{\bullet}$ و $SO_4^{\bullet-}$ تولید می‌شود که قابلیت واکنش پذیری بالائی دارند(۲۷).

$$H_2O+))) \rightarrow OH^{\bullet} + H^{\bullet} \quad (۵)$$

با این حال و با عنایت به نتایج مطالعات Wang و همکاران که طی زمان ۱۲۰ دقیقه و با استفاده از فرایند فعالسازی پرسولفات با امواج فراصوت، تنها ۴۳/۸۸ درصد کاربامازپین حذف شده بود(۲۷)، استفاده از عوامل تحریک کننده نظیر ازن و فلزات دو ظرفیتی در فرایند فعال‌سازی پرسولفات با هدف تسریع در فرایند اکسیداسیون، مورد توجه محققین قرار گرفته است(۳۲-۲۸). ازن با پتانسیل اکسیداسیون احیای ۲/۰۷ ولت، یکی از اکسیدان‌های مطرح در حذف ترکیبات آلی در محیط است که به علت عدم اثر بخشی به صورت مجزا عمدتاً به صورت توام با پراکسید ئیدروژن(۳۳)، امواج فرا صوت(۲۹)، پرسولفات(۳۲) و ... به منظور حذف مواد آلی مورد استفاده قرار می‌گیرد. بر اساس مطالعه Wang و همکاران(۱۲)، در حین استفاده توام از ازن و امواج فراصوت، عملیات تجزیه ازن در حباب‌های کاویتاسون اتفاق افتاده و نهایتاً منجر به تولید رادیکال هیدروکسیل پرقدرت بر اساس روابط ۶ و ۷ می‌شود.

$$O_3(g)+))) \rightarrow O_2(g) + O(^3P)(g) \quad (۶)$$

$$O_3(g) + H_2O \rightarrow 2OH^{\bullet}(g) \quad (۷)$$

نتایج ارائه شده توسط Hou و همکاران هر چند بیانگر اثر بخشی فرایند توام فراصوت- ازن در حذف تتراسیکلین در مقایسه با استفاده از هر یک از آن‌ها به تنهائی بوده است، اما کارائی چندانی در حذف کامل ماده آلی گزارش نشده است(۱۳). هم‌چنین نتایج مطالعه Salem و همکاران با هدف فعالسازی پرسولفات با استفاده از ازن در حذف ماده آلی، حاکی از اثر بخشی

[Downloaded from jmums.mazums.ac.ir on 2026-11-24]

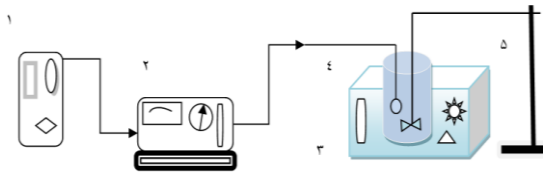
فرایند توام ازن/پرسولفات در مقایسه با هر یک از آن‌ها به تنهائی بوده است(۳۴). بر اساس بررسی‌های صورت گرفته، تاکنون مطالعه‌ای در خصوص تاثیر فرایند توام امواج فراصوت/ ازن/پرسولفات به منظور حذف ترکیبات آلی از جمله آنتی‌بیوتیک‌ها مورد مطالعه قرار نگرفته است. لذا در این مطالعه، تاثیر فرایند فعال‌سازی پرسولفات با استفاده از امواج التراسوند و ازن در حذف مترونیدازول و تاثیر پارامترهای بهره برداری در محلول‌های آبی مورد مطالعه قرار گرفته است.

مواد و روش ها

مترونیدازول، هیدروکسید سدیم، اسید کلریدریک، پرسولفات سدیم، ترت بوتانل و کلرید کلسیم از شرکت مرک آلمان تهیه شد. در این پژوهش از یک دستگاه مولد امواج فراصوت با فرکانس ۴۰ کیلوهرتز مدل Luc- 405 ساخت کشور کره و دستگاه مولد ازن مدل COD-OM نوع IA با ظرفیت حداکثری ۰/۵ گرم در ساعت ساخت شرکت HATCH مجهز به منبع تامین کننده اکسیژن استفاده شد.

مشخصات پایلوت و روش کار

مطالعه حاضر یک مطالعه تجربی است که در آزمایشگاه تحقیقاتی آب و فاضلاب دانشگاه علوم پزشکی همدان انجام گرفت. بدین منظور یک راکتور جریان منقطع به حجم یک لیتر در داخل حمام مولد امواج فراصوت با توانایی تولید فرکانس ۴۰ کیلوهرتز و تحت تاثیر ازن با دبی ۰/۵ گرم در ساعت قرار گرفت. شماتیک راکتور مورد استفاده در این پژوهش در تصویر شماره ۱ نشان داده شده است. در ابتدا با حل کردن مقدار مشخصی از پودر مترونیدازول، محلولی با غلظت ۱۰۰۰ میلی‌گرم در لیتر به عنوان محلول مادر تهیه شد. سپس غلظت‌های ۰/۵ تا ۱۰۰ میلی‌گرم در لیتر از آنتی‌بیوتیک برای رسم منحنی کالیبراسیون توسط دستگاه اسپکتروفتومتری در pH برابر ۷ تهیه شده و منحنی کالیبراسیون رسم گردید. در تمام مراحل آزمایش و به منظور بررسی پارامترهای بهره‌برداری در حذف مترونیدازول در توالی زمانی ۱۵ دقیقه تا مدت زمان ۶۰ دقیقه، نمونه‌برداری انجام و میزان جذب با استفاده از دستگاه اسپکتروفتومتر DR5000 تعیین گردید. در ادامه مراحل انجام آزمایش به شرح زیر است:



تصویر شماره ۱: طرح شماتیک پایلوت دستگاه مورد استفاده در پژوهش (۱- اکسیژن ساز، ۲- ژنراتور ازن، ۳- محفظه التراسوند، ۴- محفظه واکنش، ۵- همزن)

تاثیر تغییرات pH در فرایند $US/O_3/S_2O_8^{-2}$

بدین منظور نمونه‌های سینتیک را با افزودن هیدروکسید سدیم و اسید کلریدریک ۰/۱ نرمال در دامنه pH برابر ۳، ۵، ۷، ۹ و ۱۱ تنظیم نموده و با افزودن مترونیدازول و پرسولفات، به ترتیب به مقدار ۲۰ و ۲۵۰ میلی‌گرم در لیتر در مدت زمان ۹۰ دقیقه در معرض امواج فراصوت و مقدار ازن ۰/۵ گرم در ساعت قرار داده و پس از نمونه‌برداری، غلظت مترونیدازول تعیین شد.

تاثیر تغییرات غلظت پرسولفات در فرایند $US/O_3/S_2O_8^{-2}$

در این مرحله از انجام آزمایشات، تاثیر مقادیر متفاوت پرسولفات در محدوده ۱۰۰ تا ۱۰۰۰ میلی‌گرم در لیتر در pH بهینه، غلظت اولیه ۲۰mg/l از مترونیدازول و ازن به مقدار ۰/۵ گرم در ساعت، تحت تاثیر امواج اولتراسوند قرار گرفته و نمونه‌برداری در زمان تماس ۶۰ دقیقه انجام گرفت.

تاثیر تغییرات غلظت مترونیدازول در فرایند $US/O_3/S_2O_8^{-2}$

به منظور تعیین تاثیر تغییرات غلظت مترونیدازول

[Downloaded from jmums.mazums.ac.ir on 2026-11-24]

در محدوده ۵ تا ۳۰ میلی‌گرم در لیتر، نمونه هایی با مقادیر بهینه پرسولفات در معرض امواج فراصوت با فرکانس ۴۰ کیلوهرتز و ازن با دبی ۰/۵ گرم در ساعت در pH برابر ۵ قرار داده شد. پس از ۶۰ دقیقه، نمونه برداری صورت گرفته و میزان حذف مترونیدازول تعیین شد.

تاثیر شدت یونی در فرایند $US/O_3/S_2O_8^{-2}$

به منظور تعیین تاثیر شدت یونی بر کارایی حذف در شرایط بهینه بهره برداری در فرایند فوق، مقادیر ۰/۱۳، ۰/۲۵ و ۱/۰۳ گرم در لیتر کلرید کلسیم ($CaCl_2$) به جریان ورودی اضافه شده و در مدت زمان ۶۰ دقیقه تحت فرایند توام امواج فراصوت/ ازن/ پرسولفات قرار گرفته و میزان حذف مترونیدازول تعیین شد.

تاثیر ماده مداخله کننده در فرایند $US/O_3/S_2O_8^{-2}$

برای تعیین تاثیر ماده مداخله‌کننده، با افزودن ترت‌بوتانل در غلظت ۰/۰۲ نرمال در شرایط بهینه بهره‌برداری، نمونه سنتتیک در مدت زمان ۶۰ دقیقه در معرض امواج فراصوت و مقدار ازن ۰/۵ گرم در ساعت قرار گرفته و پس از نمونه‌برداری، غلظت مترونیدازول تعیین شد.

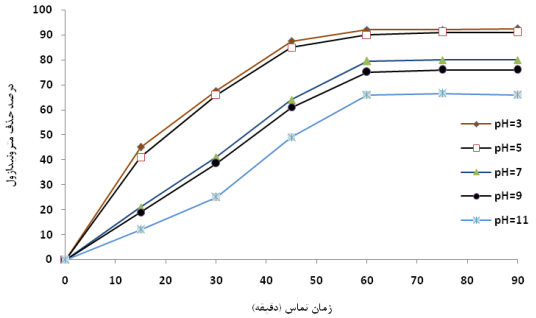
اندازه گیری غلظت مترونیدازول

همان‌گونه که بیان شد، در فواصل زمانی معین، نمونه برداری انجام و غلظت مترونیدازول در طول موج ۳۲۰ نانومتر اندازه‌گیری شد(۳۵).

یافته ها

تاثیر تغییرات pH در حذف مترونیدازول در فرایند $US/O_3/S_2O_8^{-2}$

سرعت واکنش های شیمیایی به pH محیط بستگی داشته و pH محلول به طور مستقیم و غیرمستقیم بر اکسیداسیون مواد شیمیایی تاثیر گذار است(۱۷). در فرایندهای اکسیداسیون پیشرفته، تغییرات pH از طریق تولید رادیکال های متنوع بر میزان اکسیداسیون مواد آلی تاثیرگذار است. هنگامی که محلولی تحت تاثیر امواج فراصوت قرار می گیرد، بخار آب موجود در حباب‌های ناشی از کاویتاسیون، می تواند به اشکال H° یا OH° درآید که ناشی از pH محیط است(۳۱). نتایج تاثیر مقادیر متفاوت pH محیط در دامنه ۳ تا ۱۱ در حضور پرسولفات برابر با ۲۵۰ میلی‌گرم در لیتر، ازن ۰/۵ گرم در ساعت و غلظت اولیه مترونیدازول برابر با ۲۰ میلی‌گرم در لیتر مورد بررسی قرار گرفت که نتایج در نمودار شماره ۱ نشان داده شده است. بر اساس نتایج ارائه شده در نمودار شماره ۱، در pH اسیدی نسبت به شرایط قلیایی و خنثی در فرایند توأم پرسولفات/ ازن/ التراسوند، میزان حذف ماده آلی بیش تر بوده است. بر این اساس بعد از مدت زمان ۶۰ دقیقه از انجام واکنش در pH برابر ۳، ۵، ۷، ۹ و ۱۱ به ترتیب ۹۲، ۹۰، ۷۹، ۷۵ و ۶۶ درصد از مترونیدازول حذف شد که با توجه به اختلاف ۲ درصدی بین کارائی حذف مترونیدازول در pH برابر ۳ و ۵، به منظور کاهش هزینه‌های حاصل از استفاده از اسید برای پایین آوردن pH جهت افزایش راندمان و هم چنین استفاده از مواد قلیایی برای افزایش مجدد pH در پایان واکنش، pH برابر ۵ به عنوان pH بهینه انتخاب گردید. همان‌گونه که بیان شد مهم‌ترین علت تاثیر تغییرات pH محیط بر تجزیه ترکیبات آلی در فرایندهای اکسیداسیون پیشرفته، نوع و میزان رادیکال تولیدی در این فرایند است(۲۰). انتخاب نوع رادیکال تولید شده در فرایند فعال‌سازی پرسولفات به pH محلول



نمودار شماره ۱: تاثیر pH های مختلف در حذف مترونیدازول در فرایند ازن/ امواج فراصوت/ پرسولفات (غلظت مترونیدازول ۲۰mg/l، ازن ۰/۵ گرم در ساعت و پرسولفات ۲۵۰ mg/l)

[Downloaded from jmums.mazums.ac.ir on 2026-11-24]

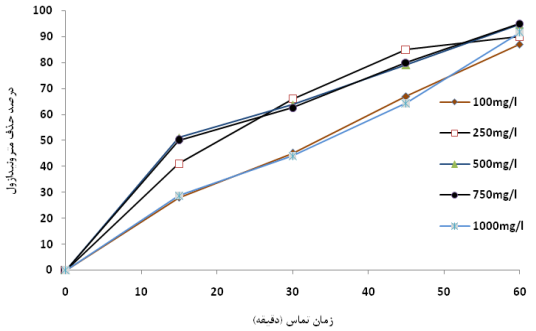
بستگی دارد. در حین استفاده از پرسولفات به عنوان ماده اکسیدان و بر اساس روابط ۱ تا ۵ و در شرایط اسیدی، رادیکال پرسولفات تولید می‌شود که دارای پتانسیل اکسیداسیون- احیای ۲/۶۵-۳/۱ ولت است. در محیط قلیائی، رادیکال سولفات با یون‌های هیدروکسیل وارد واکنش شده و رادیکال هیدروکسیل تولید می‌کنند که دارای پتانسیل اکسیداسیون- احیای ۲/۸ -۲/۷ ولت است (روابط ۸ و ۹). لذا رادیکال پرسولفات به دلیل استفاده از دو مکانیسم تهاجمی یعنی ربایش هیدروژن و انتقال الکترون و پایداری بیش‌تر در محیط، تاثیر گذاری بیش‌تری در اکسیداسیون ترکیبات آلی در مقایسه با رادیکال هیدروکسیل علاوه بر طرفیت اکیسداسیون و احیاء بیش‌تر دارد(۲۰). هم‌چنین طبق رابطه ۱۰ و در محیط‌های قلیائی، رادیکال هیدروکسیل تولید شده به عنوان رباینده رادیکال عمل نموده و واکنش آن با رادیکال پرسولفات منجر به تشکیل آنیون سولفات می‌شود که می‌تواند با رادیکال‌های فعال در یک سیستم واکنش داده و از طریق از بین بردن آن‌ها باعث کاهش راندمان حذف آلاینده در سیستم مورد نظر شود(۲۰). هم‌چنین بر اساس نتایج ارائه شده در نمودار شماره ۱ مشخص گردید که با افزایش زمان تماس از ۶۰ به ۹۰ دقیقه، کارائی حذف تغییر چندانی نداشته است که علت آن مصرف پرسولفات و تبدیل ازن به اکسیژن محلول بوده است که به همین دلیل در ادامه آزمایشات، زمان ۶۰ دقیقه جهت انجام واکنش انتخاب گردید. نتایج این مطالعه در خصوص تغییرات pH در حذف ماده آلی با مطالعه رحمانی و همکاران برای حذف آنتی بیوتیک سیپروفلوکساسین با استفاده از فرایند ازن/ پرسولفات از پساب صنایع دارویی مطابقت دارد. نتایج این مطالعه نشان داد که در شرایط بهینه بهره برداری که شامل pH برابر ۳، دز ازن ۱ گرم در ساعت، غلظت آنتی‌بیوتیک برابر ۱۰ میلی‌گرم در لیتر و غلظت پرسولفات ۱۰ میلی‌مولار بود، حداکثر به میزان ۹۶ درصد از آنتی‌بیوتیک سیپروفلوکساسین حذف شد(۳۶). هم‌چنین در مطالعه‌ای که توسط Lee و همکارانش با عنوان اکسیداسیون پرسولفات برای حذف اسید پرفلرواکتانیک انجام گرفت، نتایج نشان داد که حداکثر راندمان حذف در pH برابر ۲/۵ بوده است(۱۹). هم‌چنین در مطالعه صید محمدی و همکاران نیز بیش‌ترین مقدار حذف ماده آلی در فرایند فعالسازی پرسولفات در محیط اسیدی حاصل شده است(۱۷).

تاثیر تغییرات غلظت پرسولفات درحذف مترونیدازول در فرایند $US/O_3/S_2O_8^{-2}$

در فرایند اکسیداسیون پیشرفته، نوع و غلظت ماده اکسیدکننده یکی از فاکتورهای موثر در حذف ترکیبات آلی است. آنیون پرسولفات یکی از عوامل اکسیداسیون دو الکترونی است که در حضور فعال‌کننده‌ها، به رادیکال سولفات با قدرت اکسیداسیون و احیای بالا در مقایسه با ازن و رادیکال هیدروکسیل تبدیل می‌شود. رادیکال پرسولفات تولید شده، یکی از تاثیرگذارترین عوامل اکسیدکننده است که توانایی تجزیه ترکیبات آلی مقاوم به دی اکسیدکربن، آب و اسیدهای معدنی را دارد. این رادیکال نه تنها توانایی حمله به ترکیبات آلی به صورت مستقیم و تجزیه آن‌ها را دارد، بلکه قادر است به صورت غیر مستقیم، با آب و یون‌های هیدرکسیل وارد واکنش شده و رادیکال هیدروکسیل تولید نماید که خود عامل مهم در تجزیه مواد آلی به شمار می‌رود(۳۱،۲۷،۱۷).

نتایج مربوط به تاثیر غلظت پرسولفات در دامنه ۱۰۰ تا ۱۰۰۰ میلی‌گرم در لیتر در pH برابر با ۵ و در حضور ازن و امواج فراصوت در نمودار شماره ۲ نشان داده شده است. بر اساس نتایج ارائه شده در نمودار شماره ۲، در غلظت اولیه پرسولفات ۱۰۰، ۲۵۰، ۵۰۰، ۷۵۰ و ۱۰۰۰ میلی‌گرم در لیتر به ترتیب ۸۷، ۹۰، ۹۴/۷، ۹۵ و ۹۱/۵ درصد مترونیدازول حذف شده است. نتایج بیانگر آن بود که هر چه غلظت پرسولفات بیش‌تر باشد، به همان نسبت رادیکال‌های تولید شده بر اثر آن افزایش یافته و کارائی حذف افزایش می‌یابد. بنابراین و با عنایت به نتایج، از آن‌جائی‌که در غلظت‌های پرسولفات

[Downloaded from jmums.mazums.ac.ir on 2026-11-24]



نمودار شماره ۲: تاثیر غلظت های مختلف پرسولفات در حذف مترونیدازول در فرایند ازن/ امواج فراصوت/ پرسولفات (pH برابر ۵، غلظت مترونیدازول mg/l ۲۰و ازن ۰/۵ گرم در ساعت)

۵۰۰ و ۷۰۰ میلی گرم در لیتر، اختلافی در مقدار حذف مترونیدازول مشاهده نشد، لذا غلظت ۵۰۰ میلی گرم در لیتر به عنوان مقدار بهینه پرسولفات انتخاب گردید. اما افزایش حضور آنیون پرسولفات تا حد خاصی به عنوان منبع تولید رادیکال سولفات عمل کرده و در مقادیر بیش از مقدار بهینه، مجدداً کارائی حذف فرایند کاهش یافته است. علت این اتفاق را این گونه می توان شرح داد که بر اساس روابط ۱۲ و ۱۳، با افزایش غلظت ماده اکسیدکننده به بیش از مقدار بهینه، از یک سو رادیکال سولفات به رادیکال پرسولفات تبدیل می شود که دارای پتانسیل اکسیداسیون احیا کم‌تری نسبت به رادیکال سولفات است و از سوی دیگر رادیکال سولفات به عنوان رادیکال اسکاونجر عمل کرده و به عاملی برای تبدیل رادیکال سولفات به پرسولفات عمل می‌نماید(۲۷).

$$S_2O_8^{2-} + SO_4^{\bullet} \rightarrow SO_4^{2-} + S_2O_8^{\bullet-} \qquad (۱۲)$$

$$SO_4^{\bullet} + SO_4^{\bullet} \rightarrow S_2O_8^{2-} \qquad (۱۳)$$

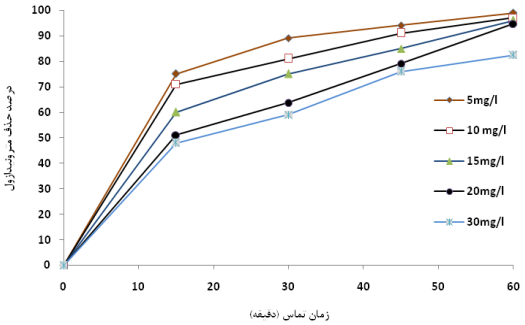
در مطالعه Hao و همکارانش برای حذف پرفلوروکتان از رپر سولفات استفاده کردند و نتایج حاکی از آن بود که با افزایش غلظت تا ۱۰۰ میلی‌مولار، راندمان حذف افزایش قابل ملاحظه‌ای دارد و با افزایش غلظت پرسولفات تا ۲۰۰ میلی مولار، شیب افزایش راندمان کم‌تر می‌شود(۲۸). هم‌چنین در مطالعه‌ای که Zhang و همکارانش با عنوان حذف تری‌کلرواتان با فرایند الترا/ پرسولفات فعال انجام دادند، راندمان حذف ماده آلی به غلظت پرسولفات بستگی داشته است(۲۹) که مشابه مطالعه حاضر می‌باشد. هم‌چنین در مطالعه انجام گرفته به وسیله قانعیان و همکاران برای حذف رنگ توسط پرسولفات پتاسیم و نور خورشید، غلظت پرسولفات مورد استفاده ۲ تا ۵ میلی‌مول بوده و با افزایش غلظت، راندمان افزایش داشت. با توجه به این که اثر غلظت‌های ۲ تا ۵ میلی مول، اختلاف چندانی نداشت، برای بررسی از غلظت ۲ میلی مول استفاده شده است(۳۷).

تاثیر تغییرات غلظت مترونیدازول در حذف مترونیدازول در فرایند $US/O_3/S_2O_8^{-2}$

فاضلاب صنایع داروسازی اغلب دارای غلظت‌های مختلفی از آنتی‌بیوتیک‌ها می‌باشد. از این رو بررسی راندمان حذف مترونیدازول به عنوان تابعی از غلظت اولیه آنتی‌بیوتیک بسیار مهم می‌باشد. نتایج تاثیر غلظت‌های اولیه مترونیدازول در دامنه ۵ تا ۳۰ میلی گرم در لیتر(۱) در شرایط بهینه بهره‌برداری (pH برابر ۵، غلظت پرسولفات برابر ۵۰۰ میلی گرم در لیتر و مدت زمان واکنش ۶۰ دقیقه) در نمودار شماره ۳ نشان داده شده است. نتایج بیانگر آن بود که در فرایند توام امواج فراصوت/ ازن/ پرسولفات، با افزایش غلظت مترونیدازول، کارایی حذف تدریجاً و به مقدار کم کاهش می‌یابد؛ به گونه‌ای که در مقادیر متفاوت مترونیدازول در غلظت‌های ۵، ۱۰، ۱۵، ۲۰ و ۳۰ میلی گرم در لیتر، کارائی حذف مترونیدازول به ترتیب به ۹۹، ۹۷، ۹۶، ۹۴/۷ و ۸۲/۵ درصد رسیده است. افزایش غلظت اولیه آلاینده در شرایط بهینه بهره برداری به دو دلیل عملکرد فرایند را تحت تاثیر قرار می‌دهد. نخست آن که در مقادیر ثابت رادیکال سولفات تولید شده، با افزایش غلظت آلاینده، میزان تماس و مواجه با رادیکال آزاد کاهش یافته و در نتیجه سرعت اکسیداسیون کاهش می‌یابد. دوم، افزایش غلظت آلاینده باعث تولید بیش‌تر محصولات جانبی ناشی از اکسیداسیون خواهد شد که این ترکیبات، مصرف‌کننده مقادیر بیش‌تری از رادیکال آزاد خواهند بود(۳۲). در این شرایط،

[Downloaded from jmums.mazums.ac.ir on 2026-11-24]

افزایش زمان تماس و افزایش غلظت ماده اکسیدکننده از جمله راه‌های غلبه بر مشکل است. نتایج سایر مطالعات مانند مطالعه انجام گرفته توسط بهرامی و همکاران در حذف مترونیدازول و یا مطالعه Zhang و همکاران در حذف متیل اورنگ نیز این نکته را که افزایش غلظت اولیه ماده هدف، بر کارایی و سرعت واکنش تاثیر گذار است تایید می‌کند(۲۹،۱).



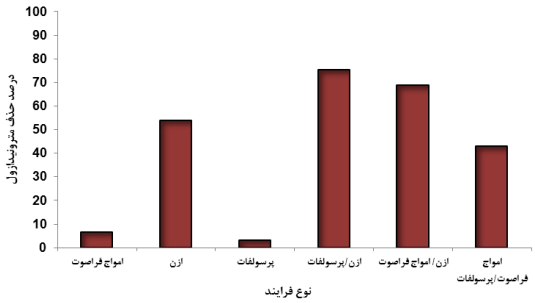
نمودار شماره ۳: تاثیر غلظت های مختلف مترونیدازول در حذف مترونیدازول در فرایند ازن/ امواج فراصوت/ پرسولفات (pH برابر ۵، غلظت پرسولفات ۲۰ mg/l و ازن ۰/۵ گرم در ساعت)

تاثیرفرایندهای ازن زنی، امواج فراصوت و پرسولفات به تنهایی بر حذف مترونیدازول

نتایج مقایسه تاثیر ازن، پرسولفات، امواج ماورائ صوت و هم‌چنین فرایندهای ازن/پرسولفات، ازن/ فراصوت و پرسولفات/فراصوت در شرایط بهینه بهره برداری در نمودار شماره ۴ نشان داده شده است. با گذشت زمان ۶۰ دقیقه از انجام واکنش به ترتیب ۵۴، ۳/۲، ۷۵/۶،۳/۶، ۶۹ و ۴۳ درصد از ماده آلی در غلظت اولیه ۵۰ میلی‌گرم بر لیتر به ترتیب توسط فرایندهای ازن، پرسولفات، امواج ماورائ صوت، ازن/پرسولفات، ازن/ فراصوت و پرسولفات/فراصوت حذف گردید. مقایسه این نتایج با فرایند توام امواج فراصوت/ازن/ پرسولفات بیانگر تاثیر بیش‌تر آن نسبت به سایر فرایندهای مورد مطالعه در این پژوهش بوده است، به نحوی که بر اساس میزان حذف می‌توان فرایندهای مورد استفاده را بر صورت زیر دسته‌بندی نمود:

امواج فراصوت/ازن/پرسولفات> ازن/پرسولفات> ازن/ فراصوت> ازن > امواج فراصوت>پرسولفات

نتایج مطالعه حاضر با مطالعه‌ای که توسط Su و همکاران با عنوان حذف آموکسی‌سیلین با استفاده از رادیکال سولفات و التراسوند انجام گرفت، مشابه است. نتایج نشان داد که راندمان حذف COD در استفاده از ازن زنی ساده در مدت زمان ۶۰ دقیقه، ۲۰ درصد بوده و در ترکیب ازن با امواج فراصوت، راندمان حذف به ۶۰ درصد رسید(۲۶).



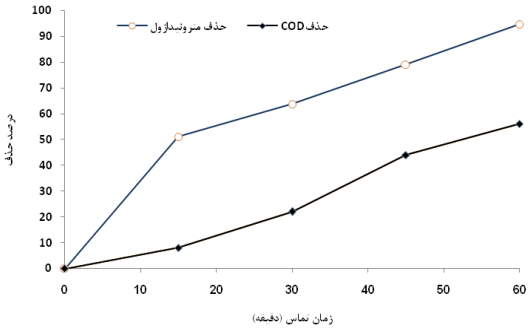
نمودار شماره ۴: مقایسه حذف مترونیدازول در شرایط بهینه بهره‌برداری در فرایندهای مختلف

تاثیر فرایند ازن/التراسوند/ پرسولفات در حذف COD

بر اساس نتایج حاصل از فرایند ازن/ التراسوند/ پرسولفات در شرایط بهینه بهره‌برداری که در نمودار شماره ۵ نشان داده شده است، با افزایش زمان تماس به تدریج و ضمن کاهش غلظت ماده آلی، میزان اکسیژن مورد نیاز شیمیائی (COD) کاهش یافت. بر این اساس و با اندازه‌گیری مقدار COD در توالی زمانی ۱۵ دقیقه از صفر تا ۶۰ دقیقه به ترتیب ۸، ۲۰، ۴۴ و ۵۶ درصد در زمان‌های ۱۵، ۳۰، ۴۵ و ۶۰ دقیقه از انجام واکنش بوده است. این در حالی است که مقدار حذف مترونیدازول در زمان‌های فوق به ترتیب ۵۱، ۶۳/۷، ۷۹ و ۹۴/۷ درصد بود. این نتایج بیانگر آن است که با وجود حذف مترونیدازول به میزان بیش از ۹۵ درصد، عملیات معدنی‌سازی کامل آن انجام نشده و در خلال فرایند، محصولات حد واسط تولید شده‌اند که سبب عدم حذف کامل COD در خروجی از راکتور شدند. مطابق با نتایج

[Downloaded from jmums.mazums.ac.ir on 2026-11-24]

این پژوهش، در مطالعه انجام گرفته توسط Hou و همکاران، برای حذف تتراسایکلین با فرایند ازن کاتالیست و التراسونیک، نتایج نشان داد که راندمان حذف COD بعد از ۲۰دقیقه واکنش، ۴۱/۸ درصد بوده و با افزایش زمان ماند تا ۱۲۰ دقیقه، راندمان حذف به ۸۹/۱ درصد رسید(۱۳).

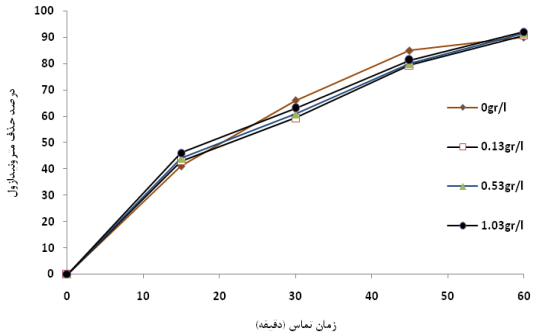


نمودار شماره ۵: مقایسه حذف COD و مترونیدازول در شرایط بهینه بهره برداری در فرایند ازن/ امواج فراصوت/ پرسولفات

در مطالعه دیگری که Salem و همکارانش برای حذف رنگ، COD و آمونیاک با استفاده از پرسولفات، ازن و فنتون انجام دادند، نتایج نشان داد که راندمان حذف این سه فاکتور در فرایند ازن/ پرسولفات به ترتیب ۷۲، ۹۳ و ۵۵ درصد بعد از ۲۱۰ دقیقه واکنش بوده و در فرایند ازن/ فنتون، راندمان حذف به ترتیب ۶۵، ۹۸ و ۲۲ درصد بعد از این مدت زمان حاصل شده است(۳۴).

تاثیر تغییرات شدت یونی در حذف مترونیدازول

نتایج تاثیر تغییرات شدت یونی با استفاده از کلرید کلسیم در فرایند التراسوند/ ازن/ پرسولفات که در نمودار شماره ۶ نشان داده شده است. در مدت زمان ۶۰ دقیقه از انجام واکنش در فرایند التراسوند/ ازن/ پرسولفات در حضور کلرید کلسیم در غلظت‌های ۱/۰۳و ۰/۵۳، ۰/۱۳ گرم در لیتر و غلظت پرسولفات ۲۵۰ میلی‌گرم در لیتر، به ترتیب راندمان حذف ۹۰/۷۵، ۹۱/۴ و ۹۲ درصد بود که در مقایسه با کارائی حذف در شرایط بدون حضور عوامل افزایش دهنده شدت یونی (۹۰ درصد)، اختلاف چندانی را نشان نمی‌دهد، اما بیانگر افزایش جزئی در کارائی سیستم است. افزایش جزئی کارائی سیستم در حذف ماده آلی را می‌توان به کاهش تمایل یون ها در نزدیک شدن به هم به دلیل افزایش شدت یونی نسبت داد. در حقیقت با افزایش قدرت یونی، تفکیک ترکیبات به یون‌های مربوطه افزایش می یابد که موجبات تجزیه ترکیبات آلی را به سایر محصولات فراهم می‌آورند. مطابق نتایج حاصل از این مطالعه، در نتایج پژوهش Hafedh و همکاران نیز در فرایند حذف مترونیدازول با الکتروشیمیایی، راندمان حذف به سرعت در حضور سدیم کلراید افزایش یافت(۳۸). در حالی که در مطالعات Waldemer و همکاران(۲۱) و زولی و همکاران(۳۹) که به ترتیب برای اکسیداسیون اتن از پرسولفات فعال شده با حرارت و برای حذف نیترات از نانو ذرات آهن استفاده کرده بودند، میزان شدت یونی رابطه عکس با میزان حذف داشته است.



نمودار شماره ۷: تغییرات شدت یونی در حذف مترونیدازول در فرایند ازن/ امواج فراصوت/ پرسولفات (pH برابر ۵، ازن ۰/۵ گرم در ساعت و پرسولفات ۲۵۰ mg/l)

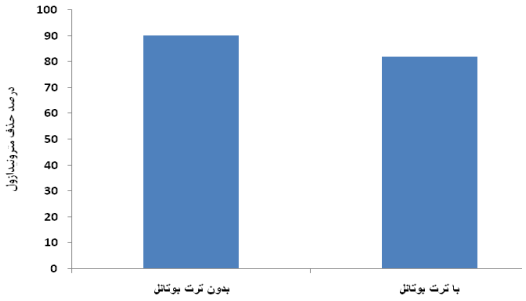
تعیین تاثیر رادیکال ترت بوتانل در حذف مترونیدازول

آنیون پرسولفات بر اثر فرایندهای شیمیایی و حرارتی فعال شده و محصولات واسطه‌ای نظیر رادیکال پرسولفات تولید می‌کند که یک ماده بالقوه اکسیدان است. حضور رادیکال پرسولفات در محلول‌های آبی می‌تواند منجر به سلسله واکنش‌هایی شود که در نهایت می‌تواند منجر به تولید رادیکال هیدروکسیل شود. هر دو رادیکال تولید شده در این فرایند، توانایی تجزیه

[Downloaded from jmums.mazums.ac.ir on 2026-11-24]

ترکیبات آلی را دارند، هر چند کارائی رادیکال سولفات با توجه به پتاتسیل اکسیداسیون و احیا بالای آن، بیش از رادیکال هیدروکسیل است(۴۰). به منظور تعیین نوع رادیکال غالب در فرایند، از ترت بوتیل الکل استفاده می‌شود که قادر است با رادیکال هیدروکسیل وارد واکنش شده و برای آن نقش رباینده رادیکال را ایفا نماید. این در حالی است که این ماده امکان واکنش با رادیکال پرسولفات را ندارد.

نتایج حاصل از تاثیر ترت بوتانل بر کارایی حذف مترنیدازول در فرایند التراسوند/ ازن/ پرسولفات در نمودار شماره۷ نشان داده شده است. براساس نتایج، پس از گذشت ۶۰ دقیقه از انجام واکنش در شرایط بهینه بهره‌برداری، کارایی حذف مترونیدازول از ۹۰ درصد به ۸۲ درصد رسید. با توجه به نتایج به دست آمده مشخص گردید که رادیکال هیدروکسیل تا حدود ۸ درصد در کارایی حذف تاثیر داشته که با افزودن ترت بوتانل، راندمان حذف به همان مقدار کاهش یافته است. لذا با عنایت به آن‌که فرایند در محیط اسیدی انجام گرفته است و از طرفی در محیط اسیدی امکان غالب بودن رادیکال پرسولفات بیش‌تر است، لذا نتایج این مرحله از انجام آزمایشات مبین غالب بودن رادیکال پرسولفات در محیط اسیدی می‌باشد.



نمودار شماره ۷: تاثیر ماده مداخله کننده در حذف مترونیدازول در فرایند ازن/ امواج فراصوت/ پرسولفات (pH برابر ۵، ازن ۰/۵ گرم در ساعت و پرسولفات ۵۰۰ mg/l)

نتایج این بخش از پژوهش با مطالعه Hao و همکارانش با عنوان تجزیه سونوشیمیایی آمونیوم پرفلوواکتان با استفاده از اکسیدان پرسولفات، مطابقت دارد(۲۸).

در این مطالعه به بررسی کارائی حذف مترونیدازول با استفاده از پرسولفات فعال شده با ازن در حضور امواج فرا صوت پرداخته شد. نتایج این مطالعه نشان داد که میزان حذف ماده آلی در فرایند امواج فراصوت/ازن/ پرسولفات متاثر از شرایط بهره‌برداری از جمله pH محیط، غلظت پرسولفات، غلظت ماده آلی و زمان تماس می‌باشد. بیش‌ترین مقدار حذف ماده آلی در محیط با pH اسیدی، غلظت ۵۰۰ میلی‌گرم در لیتر پرسولفات و در حضور ازن و امواج فراصوت اتفاق افتاد. غلظت پرسولفات عامل تاثیرگذار در کارائی فرایند بود و با افزایش آن از مقدار بهینه، راندمان حذف کاهش یافت. هم‌چنین نتایج این مطالعه نشان داد که در کاربرد هر یک از فرایندهای ازن، پرسولفات و امواج فراصوت به تنهایی امکان حذف کامل ماده آلی مقدور نبود. نتایج این مطالعه بیانگر آن بود که تغییرات شدت یونی تاثیری در حذف آلاینده نداشت. هم چنین بررسی اثر ترت بوتانل نشان داد که عمده رادیکال تولیدی در این فرایند، رادیکال پرسولفات می باشد. نتایج عملیات معدنی‌سازی در فرایند امواج فراصوت/ ازن/پرسولفات نیز بیانگر حذف ۵۶ درصدی COD در این فرایند بود.

سپاسگزاری

این پژوهش بخشی از پایان نامه کارشناسی ارشد در رشته مهندسی بهداشت محیط است که با حمایت مادی معاونت تحقیقات و فناوری دانشگاه علوم پزشکی همدان به شماره ۹۴۰۳۰۵۱۱۳۲ انجام شده است که بدین‌وسیله تقدیر و قدردانی می‌شود.

References

1. Bahramiasl F, Kermani M, Farzadkia M, Esrafili A, Salahshour Arian S, mokammel A, et al. Removal of metronidazole from aqueous solution using ozonationprocess. J

[Downloaded from jmums.mazums.ac.ir on 2026-11-24]

Mazandaran Univ Med Sci 2015; 24(121): 131-140 (Persian).

2. Dong H, Yuan X, Wang W, Qiang Z. Occurrence and removal of antibiotics in ecological and conventional wastewater treatment processes: A field study. J Environ Manage 2016; 178: 11-19.
3. Klavarioti M, Mantzavinos D, Kassinos D. Removal of residual pharmaceuticals from aqueous systems by advanced oxidation processes. J Environ Manage 2009; 35(2): 402-417.
4. Hassani AH, Torabian A, Rahimi KH. Performance of Iron-Zero (nZVI) nannoparticles in removal of cephalexin from synthetic wastewater. Journal Water & Wastewater 2012; 25(2): 85-92 (Persian).
5. Watkinson AJ, Murby EJ, Costanzo SD. Removal of antibiotics in conventional and advanced wastewater treatment: Implications for environmental discharge and wastewater recycling. Water Res 2007; 41(18): 4164-4176.
6. Shemer H, Kunukcu YK, Linden KG. Degradation of the pharmaceutical metronidazole via UV, fenton and photo-fentonprocesses. Chemosphere 2006; 63(2): 269-276.
7. Sanchez-Polo M, Rivera-Utrilla J, Prados-Joya G, Ferro-Garcia MA, Bautista-Toledo I. Removal of pharmaceutical compounds, nitromidazoles, from waters by using the ozone/ carbon system. Water Res 2008; 42(15): 4163-4171.
8. Saitoh T, Shibayama T. Removal and degradation of B-lactam antibiotics in water using didodecylimetyl ammonium bromide modified montemorillonite organoclay. J Hazard Mater 2016; 317: 677-685.
9. Rivera-Utrilla J, Parados-Joya G, Sanchez-Polo M, Ferro-Garcia MA, Bautista- Toledo I. Removal of nitromidazole antibiotics from aqueous solution adsorbtion/ bioadsorbtion on activated carbon. J Hazard Mater 2009; 170(1): 298-305.
10. Sanchez-Polo M, Rivera-Utrilla J, Prados-Joya G, Ocampo-Perez R. Metronidazole photodegradation in aqueous solation by using photosensitizers and hydrogen peroxide. J Chem Technol Biot 2011; 87(8): 1202-1208.
11. Homem V, Santos LC. Degradation and removal methods of antibiotics from aqueous matrices- A review. J Environ Manage 2011; 92(10): 2304-4237.
12. Wang Y, Zhang H, Chen L, Wang Sh, Zhang D. Ozonation combined with ultrasound for the degradation of tetracycline in a rectangular air-lift reactor. Sep Purif Tecnol 2012; 84: 138-146.
13. Hou L, Zhang H, Wang L, Chen L. Ultrasound- enhanced magnetitic catalytic ozonation of tetracycline in water. Chem Eng J 2013; 229: 577-584.
14. Hou L, Zhang H, Wang L, Chen L, Xiong Y, Xue X. Removal of sulfamethoxazole aqueous solution by sono- ozonation in the precsence of a magnetic catalyst. Sep Purif Tecnol 2013; 117: 46-52.
15. Shams Khorramabadi G, Belghadr I, Godini H, Ale-NabiAmlashi S, Hatami S, Godariz A, et al. The study of advanced oxidation process (UV/H_2O_2) performance in removal of the cefteriaxone antibiotic from aqueous solution. Yaphte 2014; 16(1): 23-31 (Persian).
16. Asgari G, Seidmohammadi A, Chavoshani A. Pentachlorophenol removal from aqueous solutions by microwave/persulfate and microwave/H_2O_2: A comparative kinetic study. J Environ Health Sci Eng . 2014; 12 (1): 8-17.
17. Seid-Mohammadi A, Asgari G, Poormohammadi A, Ahmadian M, Rezaeivahidian H. Removal

[Downloaded from jmums.mazums.ac.ir on 2026-11-24]

of phenol at high concentrations using UV/ persulfate from saline wastewater. Desalination and Water Treathment 2016; 57(42): 19988-19995.

18. Miralles-Cuevas S, Audino F, Oller I, Sanchez-Moreno R, Sanchez Parez JA, Malato S. Pharmaceutical removal from natural water by nanofilteration combined with advanced tertiary treatment (solar photo-Fenton, photo-Fenton-like Fe(III)-EDDS complex and ozonation). Sep Purif Tecnol 2014; 122: 515-22.
19. LeeY-Ch, Lo S-L, Kuo J, Lin Y-L. Persulfate oxidation of perflorooctanoic acid under the temperature of 20-40˚C. Chem Eng J 2012; 198-199: 27-32.
20. Li B, Li L, Lin K, Zhang W, Lu Sh, Luo Q. Removal of 1,1,1-trichloroethan from aqueous solution by a sono-activated persulfate process. Ultrason Sonochem 2013; 20(3): 855-863.
21. Waldemer RH, Tratnyek PG, Johnson RL, Nurmi JT. Oxidation of chlorinated ethenes by heat- activated persulfate: Kinetics and products. Environ Sci Technol 2006; 41(3): 1010-1015.
22. Hussain I, Zhang Y, Huang Sh, Du X. Degradation of *p*-chloroaniline by persulfate activated with zero-valent iron. Chem Eng J 2012; 234: 269-276.
23. Naim S, Ghauch A. Ranitidine abatement in chemically activated persulfate systems: Assessment of industrial iron waste for sustainable applications. Chem Eng J 2016; 288: 276–288.
24. Kang J, Duan X, Zhou L, Sun H, Tade MO , Wang Sh. Carbocatalytic activation of persulfate for removal of antibiotics in water solutions. Chem Eng J 2016; 288: 399-340.
25. Seid Mohammadi A, Movahedian Attar H. P-Chlorophenol oxidation in industrial effluent by Ultrasonic/Fenton technology. Water and Wastewater 2010; 4(80): 43-48 (Persian).
26. Su S, Guo W, Yi C, Leng Y, Ma Z. Degradation of amoxicillin in aqueous solution using sulfate radical under ultrasonic irradiation. Ultrason Sonochem 2012; 19(3): 469-474.
27. Wang S, Zhou N. Removal of carbamazepine from aqueous solution using sono-activated persulfate process. Ultrason Sonochem 2016; 29: 156-162.
28. Hao F, Guo W, Wang A, Leng Y, Li H. Intensification of sonochemical degradation of ammounium perflurooctanoate by persulfate oxidant. Ultrason Sonochem 2014; 21(2): 554-558.
29. Zhang H, Duan L, Zhang D. Decolorization of methyl orange by ozonation in combination with ultrasonic irradiation. J Hazard Mater 2006; 138(1): 53-59.
30. Abu Amr SS, Aziz HA, Adlan MN. Optimazation of stabilized leachate treatment using ozone/persulfate in the advanced oxidation process. Waste Manage 2013; 33(6): 1434-1441.
31. Wang X, Wang L, Li J, Qiu J, Cia C, Zhang H. Degradation of Acid Orange 7 by persulfate activated with zero valent iron in the presence of ultrasonic irradiation. Sep Purif Tecnol 2014; 122: 41-46.
32. Akbari S. Ghanbari F. Bisphenol A degradation in aqueous solutions by electrogenerated ferrous ion activated ozone, hydrogen peroxide and persulfate: Applying low current density for oxidation mechanism. Chem Eng J 2016; 294: 298-307 (Persian).
33. Oha BT, Seoa YS, Sudhakara D, Choea JH, Leea SM, Parkb YJ, et al. Oxidative degradation of endotoxin by advanced oxidation process (O_3/H_2O_2& UV/H_2O_2). J Hazard Mater 2014; 279: 105-110.

[Downloaded from jmums.mazums.ac.ir on 2026-11-24]

34. Salem SAA, Hamidi AA, Mohd NA, Mohammed JKB. Pretreatment of stabilized leachate using ozone/persulfate oxidation process. Chem Eng J 2013; 221: 492-499.
35. Ocampo-Pérez R, Orellana-Garcia F, Rivera-Utrilla J, Velo-Gala I, Lopez-Ramon MV, Alvarez-Merino MA. Nitroimidazoles adsorption on activated carbon cloth from aqueous solution. J Colloid Interface Sci 2013; 401: 116-124.
36. Rahmani AR, Shabanlo A, Majidi S, Tarlaniazar M, Mehralipoor J. Efficiency of ciprofloxacin (CIP) removal from pharmaceutical effluent using the ozone/ persulfate (O_3 /PS) process. J Water & Wastewater 2014; 1: 40-48 (Persian).
37. Rahmani AR, Shabanlo A, Majidi S, Tarlaniazar M, Mehralipoor J. Efficiency of ciprofloxacin (CIP) removal from pharmaceutical effluent using the ozone/ persulfate (O_3 /PS) process. J Water & Wastewater 2014; 1: 40-48 (Persian).
38. Hafedh B, Mabrouk B, Ridha A, Youssef S. Green electrochemical process for metronidazole degradation at BDD anode in aqueous solutions via direct and indirect oxidation. Sep Purif Technol 2016; 157: 9-16.
39. Zazouli M A, Dianatitilaki1 R, Safarpour M. Nitrate Removal from Water by nano zero Valent Iron in the Presence and Absence of Ultraviolet Light. J Mazandaran Univ Med Sci 2014; 24 (113): 151-161 (Persian).
40. Anipsitakis GP, Dionysiou DD. Degradation of chlorinated aromatics with sulfate radical generated by the conjunction of pyroxymonosulfate with cobalt. Environ Sci Technol 2003; 37(20): 4790-4797.

[Downloaded from jmums.mazums.ac.ir on 2026-11-24]